

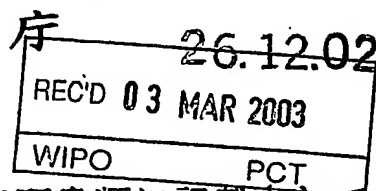
Rec'd PCT/PTO 25 JUN 2004

PCT/JP02/13659

日 本 国 特 許 庁

JAPAN PATENT OFFICE

10/500161



別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2001年12月28日

出 願 番 号

Application Number:

特願2001-400861

[ST.10/C]:

[JP2001-400861]

出 願 人

Applicant(s):

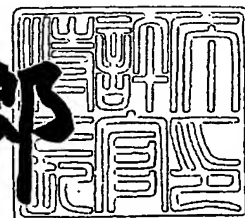
三井化学株式会社

PRIORITY  
DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 2月12日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3006026

BEST AVAILABLE COPY

【書類名】 特許願

【整理番号】 P0000392

【提出日】 平成13年12月28日

【あて先】 特許庁長官 殿

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県市原市千種海岸3 三井化学株式会社内

【氏名】 松 永 慎 也

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県市原市千種海岸3 三井化学株式会社内

【氏名】 白 田 孝

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県市原市千種海岸3 三井化学株式会社内

【氏名】 川 崎 雅 昭

【特許出願人】

【識別番号】 000005887

【氏名又は名称】 三井化学株式会社

【代理人】

【識別番号】 100081994

【弁理士】

【氏名又は名称】 鈴 木 俊一郎

【選任した代理人】

【識別番号】 100103218

【弁理士】

【氏名又は名称】 牧 村 浩 次

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 014535

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9710873

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明 細 書

【発明の名称】 燃料電池シール部品用ゴム組成物およびその用途

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A] と、

平均組成式 (I) :  $R^1_t Si O_{(4-t)/2}$  (式 (I) 中、 $R^1$  は非置換または置換の一価炭化水素基を示し、 $t$  は 1.9 ~ 2.1 の数である。) のオルガノポリシロキサン [B] と、

SiH 基含有化合物 [C] と

を含有してなり、[A] : [B] が重量比で 1.00 : 0 ~ 5 : 95 であることを特徴とする燃料電池シール部品用ゴム組成物。

【請求項 2】

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A] が、

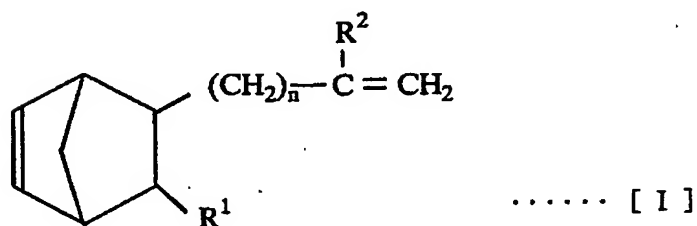
(i) エチレンと炭素原子数 3 ~ 20 の  $\alpha$ -オレフィンとの質量比 (エチレン /  $\alpha$ -オレフィン) が 35 / 65 ~ 95 / 5 の範囲にあり、

(ii) ヨウ素価が 0.5 ~ 50 の範囲にあり、

(iii) 135℃ のデカリン溶液中で測定した極限粘度  $[\eta]$  が 0.01 ~ 5.0 dl / g の範囲にあり、

(iv) 非共役ポリエンが、下記一般式 [I] または [II] で表わされる少なくとも一種の末端ビニル基含有ノルボルネン化合物から導かれる構成単位を有することを特徴とする請求項 1 に記載の燃料電池シール部品用ゴム組成物；

【化 1】

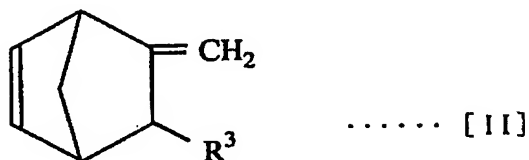


【式 [I] 中、 $n$  は 0 ないし 10 の整数であり、

$R^1$  は水素原子または炭素原子数 1 ~ 10 のアルキル基であり、

$R^2$ は水素原子または炭素原子数1～5のアルキル基である]、

【化2】



【式 [II] 中、 $R^3$ は水素原子または炭素原子数1～10のアルキル基である】

【請求項3】

前記SiH基含有化合物[C]が、SiH基を1分子中に少なくとも2個以上持つことを特徴とする請求項1または2に記載の燃料電池シール部品用ゴム組成物。

【請求項4】

前記SiH基含有化合物[C]が、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体[A]とオルガノポリシロキサン[B]との合計100重量部に対して、0.1～100重量部の量で含まれていることを特徴とする、請求項1～3のいずれかに記載の燃料電池シール部品用ゴム組成物。

【請求項5】

前記SiH基含有化合物[C]が、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体[A]と、オルガノポリシロキサン[B]とに含まれる脂肪族不飽和結合1個当たり、珪素原子に結合した水素原子を0.2～10個与える量で含んでいることを特徴とする、請求項1～4のいずれかに記載の燃料電池シール部品用ゴム組成物。

【請求項6】

前記ゴム組成物が、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体[A]、オルガノポリシロキサン[B]およびSiH基含有化合物[C]の他に、触媒[D]を含有してなることを特徴とする請求項1～5のいずれかに記載の燃料電池シール部品用ゴム組成物。

【請求項7】

前記ゴム組成物が、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体〔A〕、オルガノポリシロキサン〔B〕、SiH基含有化合物〔C〕および触媒〔D〕の他に、反応抑制剤〔E〕を含有してなることを特徴とする請求項6に記載の燃料電池シール部品用ゴム組成物。

【請求項8】

前記触媒〔D〕が白金系触媒であることを特徴とする請求項6または7に記載の燃料電池シール部品用ゴム組成物。

【請求項9】

請求項1～8のいずれかに記載のゴム組成物からなることを特徴とする燃料電池シール部品。

【請求項10】

LIM成形により得られることを特徴とする請求項9に記載の燃料電池シール部品。

【請求項11】

上記燃料電池シール部品は、射出成形または圧縮成形により得られることを特徴とする請求項9または10に記載の燃料電池シール部品。

【請求項12】

請求項9～11のいずれかに記載の燃料電池シール部品を有する燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の技術分野】

本発明は、燃料電池シール部品用ゴム組成物およびその用途に関し、さらに詳しくは、架橋速度が速く生産性に優れ、耐圧縮永久歪み性、ガスバリア性、耐酸性などの特性に優れる、燃料電池シール部品用ゴム組成物およびその用途に関する。

【0002】

【発明の技術的背景】

燃料電池は、水の電気分解の逆反応、すなわち水素と酸素を化学的に反応させることにより直接電気を取り出す効率的でクリーンな発電システムであり、近年

、自動車や家庭用の新しいエネルギーシステムとして注目されている。燃料電池のセルシール部品などとしては、耐熱性、耐酸性、耐気体透過性および高速成形性に優れた、低コストな材料が求められており、現状では、耐熱性、耐酸性からはフッ素ゴムが、耐気体透過性からはブチルゴムが、耐熱性と成形性からはシリコンゴムが、それぞれ適用されているが、高速成形性の要求に対しては、通常の方法では不十分で、この場合、液状のシリコンゴムを用い、LIM (Liquid Injection Molding) 成形を適用した方法などが考えられている。

## 【0003】

しかしながら、シリコンゴムは、耐熱性、高速成形性には優れているものの、耐酸性、耐気体透過性に劣っており、現状の燃料電池は発電性能が低いため、その改良検討が進められており、今後発電性能が高められるにつれセル内などの反応温度が高くなる傾向にある。そのため、シール材料に対してもより高温での性能が要求されている。

## 【0004】

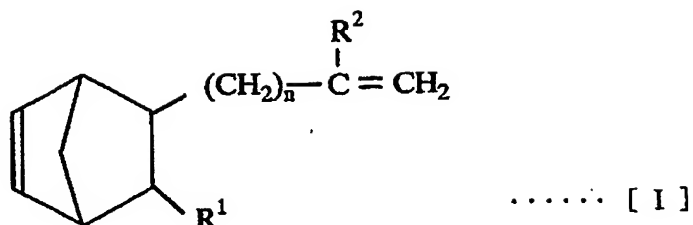
そこで、本願発明者らは、鋭意研究し、特定のエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A]、特定のオルガノポリシロキサン [B]、SiH基を1分子中に2個以上持つSiH基含有化合物 [C]、および必要に応じて触媒 [D]、反応抑制剤 [E] からなるゴム組成物が、高速成形に優れており、耐熱性、耐酸性および耐気体透過性に優れた燃料電池シール部品に好適であることを見出し、本発明を完成するに至った。

## 【0005】

なお、WO 00/55251の国際公開公報には、燃料電池シール部品用ではないが、下記一般式 [I] または [II] で表わされる少なくとも一種の末端ビニル基含有ノルボルネン化合物から導かれる構成単位を有するエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴムと、SiH基を1分子中に少なくとも2個持つSiH基含有化合物とを含有してなる、特定のゴム組成物を架橋可能な密封シールパッキン用ゴム組成物とする発明が開示されている。

## 【0006】

【化 3】



【0007】

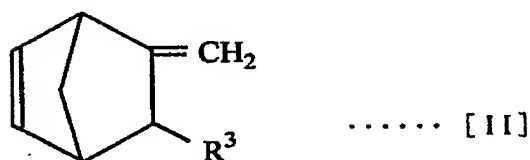
[式中、nは0ないし10の整数であり、

R¹は水素原子または炭素原子数1～10のアルキル基であり、

R²は水素原子または炭素原子数1～5のアルキル基である。]

【0008】

【化 4】



【0009】

[式中、R³は水素原子または炭素原子数1～10のアルキル基である。]

【0010】

【発明の目的】

本発明は、上記のような従来技術に伴う問題を解決しようとするものであって、耐熱性、耐酸性および耐気体透過性（ガスバリア性）に優れた燃料電池シール部品を調製し得る、高速成形性に優れた架橋可能なゴム組成物、およびそのゴム組成物を架橋して得られる燃料電池シール部品を提供することを目的としている。

【0011】

【発明の概要】

本発明に係る燃料電池シール部品用ゴム組成物は、

エチレン・α-オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A] と、



平均組成式 (I) :  $R^1_t SiO_{(4-t)/2}$  (式 (I) 中、 $R^1$  は非置換または置換の一価炭化水素基を示し、 $t$  は 1.9 ~ 2.1 の数である。) のオルガノポリシロキサン [B] と、

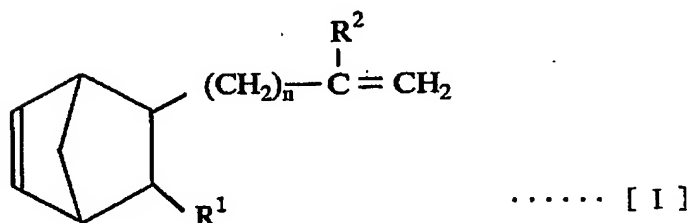
SiH 基含有化合物 [C] と含有してなり、[A] : [B] が重量比で 100 : 0 ~ 5 : 95 であることを特徴としている。

## 【0012】

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A] は、通常、  
 (i) エチレンと炭素原子数 3 ~ 20 の  $\alpha$ -オレフィンとの質量比 (エチレン /  $\alpha$ -オレフィン) が 35 / 65 ~ 95 / 5 の範囲にあり、  
 (ii) ヨウ素価が 0.5 ~ 50 の範囲にあり、  
 (iii) 135℃ のデカリン溶液中で測定した極限粘度  $[\eta]$  が 0.01 ~ 5.0 dl / g の範囲にあり、  
 (iv) 非共役ポリエンが、下記一般式 [I] または [II] で表わされる少なくとも一種の末端ビニル基含有ノルボルネン化合物から導かれる構成単位を有する。

## 【0013】

## 【化5】



## 【0014】

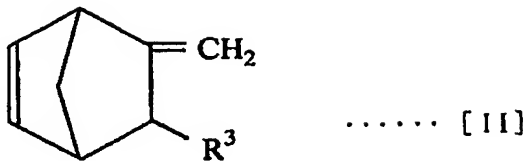
[式 [I] 中、 $n$  は 0 ないし 10 の整数であり、

$R^1$  は水素原子または炭素原子数 1 ~ 10 のアルキル基であり、

$R^2$  は水素原子または炭素原子数 1 ~ 5 のアルキル基である。]

## 【0015】

【化 6】



【0016】

〔式 [II] 中、 $R^3$  は水素原子または炭素原子数 1～10 のアルキル基である。

]

前記 SiH 基含有化合物 [C] としては、通常、SiH 基を 1 分子中に少なくとも 2 個以上持つ化合物が用いられる。

上記燃料電池シール部品用ゴム組成物では、前記 SiH 基含有化合物 [C] が、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A] とオルガノポリシロキサン [B] との合計 100 重量部に対して、0.1～100 重量部の量で含まれていることが好ましい。

【0017】

また、前記 SiH 基含有化合物 [C] が、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A] と、オルガノポリシロキサン [B] とに含まれる脂肪族不飽和結合 1 個当たり、珪素原子に結合した水素原子を 0.2～10 個与える量で含んでいることが好ましい。

本発明に係る燃料電池シール部品用ゴム組成物は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A]、上記オルガノポリシロキサン [B]、SiH 基含有化合物 [C] の他に、触媒 [D]、さらには必要に応じて反応抑制剤 [E] を含有させることができる。

【0018】

前記触媒 [D] としては、白金系触媒が好ましく用いられる。

本発明に係る燃料電池シール部品は、前記の、本発明に係る燃料電池シール部品用ゴム組成物からなることを特徴としている。

また、本発明に係る燃料電池シール部品は、本発明に係る燃料電池シール部品用ゴム組成物から LIM 成形により得られるものであってもよい。

## 【 0 0 1 9 】

上記燃料電池シール部品は、射出成形または圧縮成形により得られるものであるのもよい。

本発明に係る燃料電池は、上記何れかに記載の燃料電池シール部品を有している。

## 【 0 0 2 0 】

## 【発明の具体的説明】

以下、本発明に係る燃料電池シール部品用ゴム組成物およびその用途について具体的に説明する。

燃料電池シール部品用ゴム組成物

本発明に係る燃料電池シール部品用ゴム組成物は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A] と、

平均組成式 (I) :  $R^1_t Si O_{(4-t)/2}$  (式 (I) 中、 $R^1$  は非置換または置換の一価炭化水素基を示し、 $t$  は 1.9 ~ 2.1 の数である。) のオルガノポリシロキサン [B] と、

SiH 基含有化合物 [C] 好ましくは SiH 基を 1 分子中に少なくとも 2 個以上持つ SiH 基含有化合物 [C] とを含有し、必要に応じて触媒 [D]、さらには反応抑制剤 [E] を含有している。

## 【 0 0 2 1 】

そして、該燃料電池シール部品用ゴム組成物は、上記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A] とオルガノポリシロキサン [B] との重量比 ([A] : [B]) が 100 : 0 ~ 5 : 95 であり、より好ましくは 100 : 0 ~ 60 : 40、更に好ましくは 100 : 0 ~ 70 : 30 (但し、[A] + [B] = 100 重量部とする。) であることが望ましい。本発明では、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A] とオルガノポリシロキサン [B] との重量比 ([A] : [B]) が 100 : 0 である態様も、1 つの態様である。

## 【 0 0 2 2 】

また、この燃料電池シール部品用ゴム組成物は、架橋可能な組成物であることが好ましい。

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A]

本発明で用いられるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A] は、エチレンと、炭素原子数 3～20 の  $\alpha$ -オレフィンと、非共役ポリエンとの共重合体である。そして、好ましい態様においては、このエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A] は、ランダム共重合体であることが望ましい。

## 【0023】

このような炭素原子数 3～20 の  $\alpha$ -オレフィンとしては、具体的には、プロピレン、1-ブテン、4-メチル-1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、1-ウンデセン、1-ドデセン、1-トリデセン、1-テトラデセン、1-ペンタデセン、1-ヘキサデセン、1-ヘプタデセン、1-ノナデセン、1-エイコセン、9-メチル-1-デセン、11-メチル-1-ドデセン、12-エチル-1-テトラデセンなどが挙げられる。中でも、炭素原子数 3～10 の  $\alpha$ -オレフィンが好ましく、特にプロピレン、1-ブテン、1-ヘキセン、1-オクテンなどが好ましく用いられる。

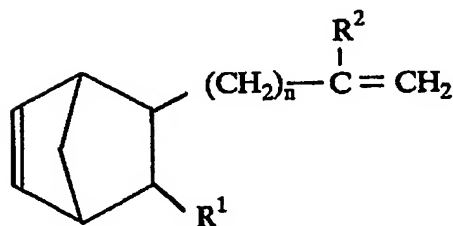
## 【0024】

これらの  $\alpha$ -オレフィンは、単独で、あるいは 2 種以上組み合わせて用いられる。

本発明で用いられる非共役ポリエンは、下記的一般式 [I] または [II] で表わされる末端ビニル基含有ノルボルネン化合物である。

## 【0025】

【化 7】



..... [I]

## 【0026】

一般式 [I] において、 $n$  は 0 ないし 10 の整数であり、

$R^1$ は水素原子または炭素原子数1～10のアルキル基であり、

$R^1$ の炭素原子数1～10のアルキル基としては、具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*sec*-ブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、イソペンチル基、*t*-ペンチル基、ネオペンチル基、ヘキシル基、イソヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基などが挙げられる。

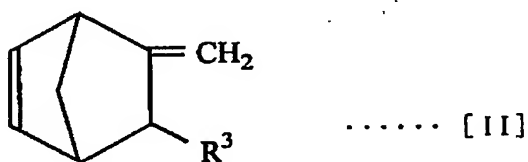
【0027】

$R^2$ は水素原子または炭素原子数1～5のアルキル基である。

$R^2$ の炭素原子数1～5のアルキル基の具体例としては、上記 $R^1$ の具体例のうち、炭素原子数1～5のアルキル基が挙げられる。

【0028】

【化8】



【0029】

一般式 [II] において、 $R^3$ は水素原子または炭素原子数1～10のアルキル基である。

$R^3$ のアルキル基の具体例としては、上記 $R^1$ のアルキル基の具体例と同じアルキル基を挙げることができる。

上記一般式 [I] または [II] で表わされるノルボルネン化合物としては、具体的には、5-メチレン-2- ノルボルネン、5-ビニル-2- ノルボルネン、5-(2-プロペニル)-2- ノルボルネン、5-(3-ブテニル)-2- ノルボルネン、5-(1-メチル-2- プロペニル)-2- ノルボルネン、5-(4-ペンテニル)-2- ノルボルネン、5-(1-メチル-3- ブテニル)-2- ノルボルネン、5-(5-ヘキセニル)-2- ノルボルネン、5-(1-メチル-4- ペンテニル)-2- ノルボルネン、5-(2,3-ジメチル-3- ブテニル)-2- ノルボルネン、5-(2-エチル-3- ブテニル)-2- ノルボルネン、5-(6-ヘプテニル)-2- ノルボルネン、5-(3-メチル-5- ヘキセニル)-2- ノ

ルボルネン、5-(3,4-ジメチル-4-ペンテニル)-2-ノルボルネン、5-(3-エチル-4-ペンテニル)-2-ノルボルネン、5-(7-オクテニル)-2-ノルボルネン、5-(2-メチル-6-ヘプテニル)-2-ノルボルネン、5-(1,2-ジメチル-5-ヘキセニル)-2-ノルボルネン、5-(5-エチル-5-ヘキセニル)-2-ノルボルネン、5-(1,2,3-トリメチル-4-ペンテニル)-2-ノルボルネンなど挙げられる。このなかでも、5-ビニル-2-ノルボルネン、5-メチレン-2-ノルボルネン、5-(2-プロペニル)-2-ノルボルネン、5-(3-ブテニル)-2-ノルボルネン、5-(4-ペンテニル)-2-ノルボルネン、5-(5-ヘキセニル)-2-ノルボルネン、5-(6-ヘプテニル)-2-ノルボルネン、5-(7-オクテニル)-2-ノルボルネンが好ましい。これらのノルボルネン化合物は、単独で、あるいは2種以上組み合わせて用いることができる。

## 【0030】

上記ノルボルネン化合物たとえば5-ビニル-2-ノルボルネンの他に、本発明の目的とする物性を損なわない範囲で、以下に示す非共役ポリエンを併用することもできる。

このような非共役ポリエンとしては、具体的には、1,4-ヘキサジエン、3-メチル-1,4-ヘキサジエン、4-メチル-1,4-ヘキサジエン、5-メチル-1,4-ヘキサジエン、4,5-ジメチル-1,4-ヘキサジエン、7-メチル-1,6-オクタジエン等の鎖状非共役ジエン；

メチルテトラヒドロインデン、5-エチリデン-2-ノルボルネン、5-メチレン-2-ノルボルネン、5-イソプロピリデン-2-ノルボルネン、5-ビニリデン-2-ノルボルネン、6-クロロメチル-5-イソプロペニル-2-ノルボルネン、ジシクロペンタジエン等の環状非共役ジエン；

2,3-ジイソプロピリデン-5-ノルボルネン、2-エチリデン-3-イソプロピリデン-5-ノルボルネン、2-プロペニル-2,2-ノルボルナジエン等のトリエンなどが挙げられる。

## 【0031】

上記のような諸成分からなるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体[A]は、以下のような特性を有している。

(i) エチレンと炭素原子数3～20の $\alpha$ -オレフィンとの質量比（エチレン/ $\alpha$ -オレフィン）

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体[A]は、(a)エチレンから導かれる単位と、(b)炭素原子数3～20の $\alpha$ -オレフィン（以下単に $\alpha$ -オレフィンということがある）から導かれる単位とを、35/65～95/5、好ましくは40/60～90/10、好ましくは45/55～85/15、特に好ましくは50/50～80/20の質量比[(a)/(b)]で含有している。

#### 【0032】

この質量比が上記範囲内にあると、耐熱老化性、強度特性およびゴム弾性に優れるとともに、耐寒性および加工性に優れた架橋ゴム成形体を提供できるゴム組成物が得られる。

(ii) ヨウ素価

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体[A]のヨウ素価は、0.5～50(g/100g)、好ましくは1～45(g/100g)、より好ましくは1～43(g/100g)、特に好ましくは3～40(g/100g)である。

#### 【0033】

このヨウ素価が上記範囲内にあると、架橋効率の高いゴム組成物が得られ、耐圧縮永久歪み性に優れるとともに、耐環境劣化性（＝耐熱老化性）に優れた架橋ゴム成形体を提供できるゴム組成物が得られる。ヨウ素価が上記範囲を超えると（特に50を超えると）、架橋密度が高くなり過ぎて引張伸びなどの機械特性が低下することがある。

(iii) 極限粘度

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体[A]の135℃デカリン中で測定した極限粘度 $[\eta]$ は、0.01～5.0dl/g、好ましくは0.03～4.0dl/g、さらに好ましくは0.05～3.5dl/g、特に好ましくは0.07～3.0dl/gであることが望ましい。更に、本発明に係る燃料電池シール部品用ゴム組成物をLIM成形に適用する場合には、そのエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体[A]の135℃デカリン中で測定

した極限粘度  $[\eta]$  は、 $0.01 \sim 1.5 \text{ dl/g}$ 、好ましくは  $0.03 \sim 1.3 \text{ dl/g}$ 、さらに好ましくは  $0.05 \sim 1.2 \text{ dl/g}$ 、特に好ましくは  $0.07 \sim 1.1 \text{ dl/g}$  であることが望ましい。

## 【0034】

この極限粘度  $[\eta]$  が上記範囲内にあると、強度特性および耐圧縮永久歪み性に優れるとともに、加工性に優れた架橋ゴム成形体を提供できるゴム組成物が得られる。

本発明で用いられるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A] は、「ポリマー製造プロセス（（株）工業調査会、発行p.365～378）もしくは本願出願人の出願に係る特開平9-71617号公報、特開平9-71618号公報、特開平9-208615号公報、特開平10-67823号公報、特開平10-67824号公報、特開平10-110054号公報などに記載されているような従来公知の方法により調製することができる。

## 【0035】

本発明で用いられるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A] の製造の際に用いられるオレフィン重合用触媒としては、

バナジウム (V)、ジルコニウム (Zr)、チタニウム (Ti) 等の遷移金属化合物と、有機アルミニウム化合物（有機アルミニウムオキシ化合物）とからなるチーグラ触媒、あるいは元素の周期律表第IVB族から選ばれる遷移金属のメタロセン化合物と、有機アルミニウムオキシ化合物またはイオン化イオン性化合物とからなるメタロセン触媒が特に好ましく用いられる。

## 【0036】

また、下記の化合物 (H) および (I) を主成分として含有する触媒を用いてエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A] を調製すると、沸騰キシレン不溶解分が1%以下のエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A] が得られるので好ましい。

すなわち、キシレン不溶解分が1%以下のエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A] は、下記化合物 (H) および (I) を主成分として含有する触媒の存在下に、重合温度  $30 \sim 60^\circ\text{C}$ 、特に  $30 \sim 59^\circ\text{C}$ 、重合圧力  $4 \sim$



$12 \text{ kg f / cm}^2$ 、特に  $5 \sim 8 \text{ kg f / cm}^2$ 、非共役ポリエンとエチレンとの供給量のモル比（非共役ポリエン／エチレン） $0.01 \sim 0.2$ の条件で、エチレンと、炭素原子数  $3 \sim 20$  の  $\alpha$ -オレフィンと、上記一般式 [I] または [II] で表わされる末端ビニル基含有ノルボルネン化合物とをランダム共重合することにより得られる。共重合は、炭化水素媒体中で行なうのが好ましい。

(H)  $\text{VO}(\text{OR})_n\text{X}_{3-n}$ （式中、Rは炭化水素基であり、Xはハロゲン原子であり、nは0または1～3の整数である）で表わされる可溶性バナジウム化合物、または  $\text{VX}_4$ （Xはハロゲン原子である）で表わされるバナジウム化合物。

#### 【0037】

上記可溶性バナジウム化合物（H）は、重合反応系の炭化水素媒体に可溶性の成分であり、具体的には、一般式  $\text{VO}(\text{OR})_a\text{X}_b$  または  $\text{V}(\text{OR})_c\text{X}_d$ （式中、Rは炭化水素基であり、 $0 \leq a \leq 3$ 、 $0 \leq b \leq 3$ 、 $2 \leq a + b \leq 3$ 、 $0 \leq c \leq 4$ 、 $0 \leq d \leq 4$ 、 $3 \leq c + d \leq 4$ ）で表わされるバナジウム化合物、あるいはこれらの電子供与体付加物を代表例として挙げるができる。

#### 【0038】

より具体的には、 $\text{VOCl}_3$ 、 $\text{VO}(\text{OC}_2\text{H}_5)\text{Cl}_2$ 、 $\text{VO}(\text{OC}_2\text{H}_5)_2\text{Cl}$ 、 $\text{VO}(\text{O}-\text{iso}-\text{C}_3\text{H}_7)\text{Cl}_2$ 、 $\text{VO}(\text{O}-n-\text{C}_4\text{H}_9)\text{Cl}_2$ 、 $\text{VO}(\text{OC}_2\text{H}_5)_3$ 、 $\text{VOBr}_3$ 、 $\text{VCl}_4$ 、 $\text{VOCl}_3$ 、 $\text{VO}(\text{O}-n-\text{C}_4\text{H}_9)_3$ 、 $\text{VCl}_3 \cdot 2\text{OC}_6\text{H}_{12}\text{OH}$ などを例示することができる。

(I)  $\text{R}'_m\text{AlX}'_{3-m}$ （R'は炭化水素基であり、X'はハロゲン原子であり、mは1～3である）で表わされる有機アルミニウム化合物。

#### 【0039】

上記有機アルミニウム化合物（I）としては、具体的には、

トリエチルアルミニウム、トリブチルアルミニウム、トリイソプロピルアルミニウム等のトリアルキルアルミニウム；

ジエチルアルミニウムエトキシド、ジブチルアルミニウムブトキシド等のジアルキルアルミニウムアルコキシド；

エチルアルミニウムセスキエトキシド、ブチルアルミニウムセスキブトキシド

等のアルキルアルミニウムセスキアルコキシド；

$R^{1}_{0.5}Al(OR^1)_{0.5}$  などで表わされる平均組成を有する部分的にアルコキシ化されたアルキルアルミニウム；

ジエチルアルミニウムクロリド、ジブチルアルミニウムクロリド、ジエチルアルミニウムブロミド等のジアルキルアルミニウムハライド；

エチルアルミニウムセスキクロリド、ブチルアルミニウムセスキクロリド、エチルアルミニウムセスキブロミド等のアルキルアルミニウムセスキハライド、

エチルアルミニウムジクロリド、プロピルアルミニウムジクロリド、ブチルアルミニウムジブロミド等のアルキルアルミニウムジハライド等の部分的にハロゲン化されたアルキルアルミニウム；

ジエチルアルミニウムヒドリド、ジブチルアルミニウムヒドリド等のジアルキルアルミニウムヒドリド、

エチルアルミニウムジヒドリド、プロピルアルミニウムジヒドリド等のアルキルアルミニウムジヒドリド等の部分的に水素化されたアルキルアルミニウム；

エチルアルミニウムエトキシクロリド、ブチルアルミニウムブトキシクロリド、エチルアルミニウムエトキシブロミド等の部分的にアルコキシ化およびハロゲン化されたアルキルアルミニウムなどを挙げることができる。

#### 【0040】

本発明において、上記化合物（H）のうち、 $VOCl_3$  で表わされる可溶性バナジウム化合物と、上記化合物（I）のうち、 $Al(OC_2H_5)_2Cl/Al_2(OC_2H_5)_3Cl_3$  とのブレンド物（ブレンド比は1/5以上）を触媒成分として使用すると、ソックスレー抽出（溶媒：沸騰キシレン、抽出時間：3時間、メッシュ：325）後の不溶解分が1%以下であるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体〔A〕が得られるので好ましい。

#### 【0041】

#### オルガノポリシロキサン〔B〕

オルガノポリシロキサン〔B〕は、本発明の燃料電池シール部品用ゴム組成物中にあって、耐熱老化性を向上させるという作用を有し、得られる燃料電池シール部品の耐熱老化性向上に寄与し、下記平均組成式（I）で示されるものである

## 【0042】



上記式(I)における $R^1$ は非置換又は置換の一価炭化水素基を表し、通常炭素数1～10、特に1～8のもので、具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ヘキシル基、オクチル基等のアルキル基；

シクロペンチル基、シクロヘキシル基等のシクロアルキル基、ビニル基、アリル基、プロペニル基等のアルケニル基；

シクロアルケニル基、フェニル基、トリル基等のアリール基；

ベンジル基、フェニルエチル基等のアラルキル基；

あるいはこれらの基の水素原子の一部又は全部が塩素原子、フッ素原子、シアノ基などの有機基で置換されたハロゲン化炭化水素基；

シアノ化炭化水素基；

等が例示される。

## 【0043】

特に、該オルガノポリシロキサンの主鎖がジメチルシロキサン単位からなるものあるいはこのジメチルポリシロキサンの主鎖の一部にフェニル基、ビニル基、3, 3, 3-トリフルオロプロピル基等を有するジフェニルシロキサン単位、メチルビニルシロキサン単位、メチル-3, 3, 3-トリフルオロプロピルシロキサン単位等を導入したものなどが好適である。

## 【0044】

この場合、オルガノポリシロキサン[B]は、1分子中に2個以上のアルケニル基、シクロアルケニル基等の脂肪族不飽和基を有するものが好ましく、 $R^1$ 中0.01～20モル%、特に0.02～10モル%がかかる脂肪族不飽和基、特にビニル基であることが好ましい。

この脂肪族不飽和基は、分子鎖末端でも、分子鎖の途中でも、その両方にあってもよいが、少なくとも分子鎖末端にあることが好ましい。

## 【0045】

なお、式(I)中、 $t$ は1.9～2.1の正数である。

本発明に用いるオルガノポリシロキサンは、分子鎖末端がトリメチルシリル基、ジメチルフェニルシリル基、ジメチルヒドロキシシリル基、ジメチルビニルシリル基、トリビニルシリル基等で封鎖されたものを挙げる事ができる。

本発明に用いるオルガノポリシロキサンとして、特に好ましいものは、メチルビニルポリシロキサン、メチルフェニルビニルポリシロキサン、メチルトリフルオロプロピルビニルポリシロキサン等を挙げる事ができる。

#### 【0046】

このようなオルガノポリシロキサンは、例えば、オルガノハロゲノシランの1種又は2種以上を(共)加水分解縮合することにより、あるいは環状ポリシロキサン(シロキサンの3量体あるいは4量体など)をアルカリ性又は酸性の触媒を用いて開環重合することによって得ることができる。これらは基本的に直鎖状のジオルガノポリシロキサンであるが、分子構造の異なる2種又は3種以上の混合物であってもよい。

#### 【0047】

なお、上記オルガノポリシロキサンの粘度は、25℃で100センチストークス(cSt)以上が好ましく、特に好ましくは100,000~100,000,000cStである。

オルガノポリシロキサンの重合度は100以上が好ましく、特に好ましくは3,000~20,000である。

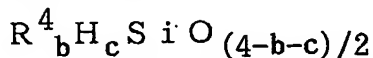
#### 【0048】

#### SiH基含有化合物 [C]

本発明で用いられるSiH基含有化合物[C]は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体[A]および/またはオルガノポリシロキサン[B]と反応し、架橋剤として作用する。このSiH基含有化合物[C]は、その分子構造に特に制限はなく、従来製造されている例えば線状、環状、分岐状構造あるいは三次元網目状構造の樹脂状物などでも使用可能であるが、1分子中に少なくとも2個以上のケイ素原子に直結した水素原子、すなわちSiH基を含んでいることが必要である。

#### 【0049】

このような Si H 基含有化合物 [C] としては、通常、下記の一般組成式



で表わされる化合物を使用することができる。

上記一般組成式において、 $R^4$  は、脂肪族不飽和結合を除く、炭素原子数 1 ~ 10、特に炭素原子数 1 ~ 8 の置換または非置換の 1 価炭化水素基であり、このような 1 価炭化水素基としては、前記一般式 [I] の  $R^1$  に例示したアルキル基の他に、フェニル基、ハロゲン置換のアルキル基たとえばトリフロロプロピル基を例示することができる。中でも、メチル基、エチル基、プロピル基、フェニル基、トリフロロプロピル基が好ましく、特にメチル基、フェニル基が好ましい。

#### 【0050】

また、 $b$  は、 $0 \leq b < 3$ 、好ましくは  $0.6 < b < 2$ 、特に好ましくは  $1.5 \leq b \leq 2$  であり、 $c$  は、 $0 < c \leq 3$ 、好ましくは  $0.002 \leq c < 2$ 、特に好ましくは  $0.01 \leq c \leq 1$  であり、かつ、 $b + c$  は、 $0 < b + c \leq 3$ 、好ましくは  $1.5 < b + c \leq 2.7$  である。

この Si H 基含有化合物 [C] は、1 分子中のケイ素原子数が好ましくは 2 ~ 1000 個、特に好ましくは 2 ~ 300 個、最も好ましくは 4 ~ 200 個のオルガノハイドロジェンポリシロキサンであり、具体的には、

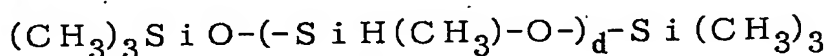
1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン、1,3,5,7-テトラメチルテトラシクロシロキサン、1,3,5,7,8-ペンタメチルペンタシクロシロキサン等のシロキサンオリゴマー；

分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンポリシロキサン、分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体、分子鎖両末端シラノール基封鎖メチルハイドロジェンポリシロキサン、分子鎖両末端シラノール基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体、分子鎖両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンポリシロキサン、分子鎖両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体、 $R^4_2(H)SiO_{1/2}$  単位と  $SiO_{4/2}$  単位とからなり、任意に  $R^4_3$

$\text{SiO}_{1/2}$  単位、 $\text{R}^4_2\text{SiO}_{2/2}$  単位、 $\text{R}^4(\text{H})\text{SiO}_{2/2}$  単位、 $(\text{H})\text{SiO}_{3/2}$  または  $\text{R}^4\text{SiO}_{3/2}$  単位を含み得るシリコンレジンなどを挙げることができる。

## 【0051】

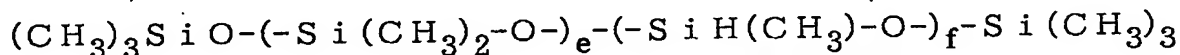
分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンポリシロキサンとしては、たとえば下式で示される化合物、さらには下式においてメチル基の一部または全部をエチル基、プロピル基、フェニル基、トリフロロプロピル基等で置換した化合物などが挙げられる。



[式中の  $d$  は 2 以上の整数である。]

分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体としては、下式で示される化合物、さらには下式においてメチル基の一部または全部をエチル基、プロピル基、フェニル基、トリフロロプロピル基等で置換した化合物などが挙げられる。

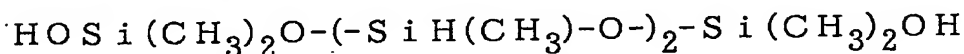
## 【0052】



[式中の  $e$  は 1 以上の整数であり、 $f$  は 2 以上の整数である。]

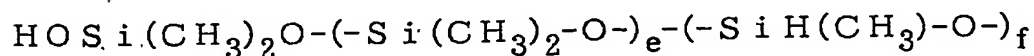
分子鎖両末端シラノール基封鎖メチルハイドロジェンポリシロキサンとしては、たとえば下式で示される化合物、さらには下式においてメチル基の一部または全部をエチル基、プロピル基、フェニル基、トリフロロプロピル基等で置換した化合物などが挙げられる。

## 【0053】



分子鎖両末端シラノール基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体としては、たとえば下式で示される化合物、さらには下式においてメチル基の一部または全部をエチル基、プロピル基、フェニル基、トリフロロプロピル基等で置換した化合物などが挙げられる。

## 【0054】

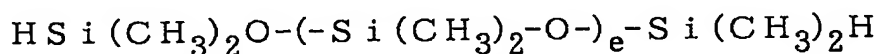




[式中の e は 1 以上の整数であり、f は 2 以上の整数である。]

分子鎖両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサンとしては、たとえば下式で示される化合物、さらには下式においてメチル基の一部または全部をエチル基、プロピル基、フェニル基、トリフロロプロピル基等で置換した化合物などが挙げられる。

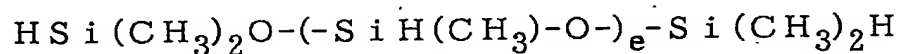
【0055】



[式中の e は 1 以上の整数である。]

分子鎖両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンポリシロキサンとしては、たとえば下式で示される化合物、さらには下式においてメチル基の一部または全部をエチル基、プロピル基、フェニル基、トリフロロプロピル基等で置換した化合物などが挙げられる。

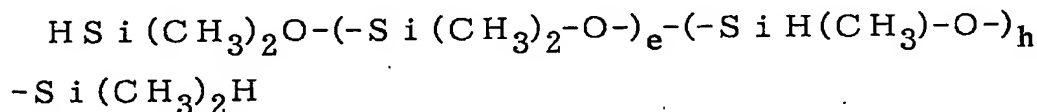
【0056】



[式中の e は 1 以上の整数である。]

分子鎖両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体としては、たとえば下式で示される化合物、さらには下式においてメチル基の一部または全部をエチル基、プロピル基、フェニル基、トリフロロプロピル基等で置換した化合物などが挙げられる。

【0057】



[式中の e および h は、それぞれ 1 以上の整数である。]

このような化合物は、公知の方法により製造することができ、たとえばオクタメチルシクロテトラシロキサンおよび／またはテトラメチルシクロテトラシロキサンと、末端基となり得るヘキサメチルジシロキサンあるいは 1,3-ジハイドロ-1,1,3,3-テトラメチルジシロキサンなどの、トリオルガノシリル基あるいはジオルガノハイドロジェンシロキシ基を含む化合物とを、硫酸、トリフルオロメタン

スルホン酸、メタンスルホン酸等の触媒の存在下に、 $-10^{\circ}\text{C}\sim+40^{\circ}\text{C}$ 程度の温度で平衡化させることによって容易に得ることができる。

## 【0058】

SiH基含有化合物[C]は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体[A]とオルガノポリシロキサン[B]との合計([A]+[B])100重量部に対して、0.1~100重量部、好ましくは0.1~75重量部、より好ましくは0.1~50重量部、さらに好ましくは0.2~30重量部、さらに好ましくは0.2~20重量部、特に好ましくは0.5~10重量部、最も好ましくは0.5~5重量部の割合で用いられる。上記範囲内の割合でSiH基含有化合物[C]を用いると、耐圧縮永久歪み性に優れるとともに、架橋密度が適度で強度特性および伸び特性に優れた架橋ゴム成形体を形成できるゴム組成物が得られる。100重量部を超える割合でSiH基含有化合物[C]を用いると、コスト的に不利になるので好ましくない。

## 【0059】

また、SiH基含有化合物[C]が、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体[A]([A]成分)とオルガノポリシロキサン[B]([B]成分)とに含まれる脂肪族不飽和結合(アルケニル基及びジエン基など)1個に対し、ケイ素原子に結合した水素原子( $\equiv\text{SiH}$ 基)の割合が0.2~10の範囲が適当であり、好ましくは0.7~5となるような範囲が適当である。0.2より少ないと架橋が十分でなく、十分な機械的強度が得られないことがあり、また、10より多いと硬化後の物理特性が低下し、特に耐熱性と圧縮永久歪みが著しく劣化することがある。

## 【0060】

触媒 [D]

本発明で任意成分として用いられる触媒[D]は、付加反応触媒であり、上記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体[A]成分のアルケニル基などおよび/またはオルガノポリシロキサン[B]成分のアルケニル基などと、SiH基含有化合物[C]のSiH基との付加反応(アルケンのヒドロシリル化反応など)を促進するものである。



## 【0061】

該触媒 [D] としては、通常、たとえば白金系触媒、パラジウム系触媒、ロジウム系触媒等の白金族元素よりなる付加反応用触媒が用いられるが、本発明においては、白金系触媒が好ましい。白金系触媒を含めて、触媒 [D] としては、周期律表 8 族元素金属、特に好ましくは白金と、ビニル基および／またはカルボニル基を含む化合物との錯体を用いることが望ましい。

## 【0062】

カルボニル基を含む化合物としては、カルボニル、オクタナル等が好ましい。これらと白金との錯体としては、具体的には、白金－カルボニル錯体、白金－オクタナル錯体、白金－カルボニルブチル環状シロキサン錯体、白金－カルボニルフェニル環状シロキサン錯体などが挙げられる。

ビニル基を含む化合物としては、ビニル基含有オルガノシロキサンが好ましい。これらと白金との錯体としては、具体的には、白金－ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体、白金－ジビニルテトラエチルジシロキサン錯体、白金－ジビニルテトラプロピルジシロキサン錯体、白金－ジビニルテトラブチルジシロキサン錯体、白金－ジビニルテトラフェニルジシロキサン錯体が挙げられる。

## 【0063】

ビニル基含有オルガノシロキサンの中でも、ビニル基含有環状オルガノシロキサンが好ましい。これらと白金との錯体としては、白金－ビニルメチル環状シロキサン錯体、白金－ビニルエチル環状シロキサン錯体、白金－ビニルプロピル環状シロキサン錯体が挙げられる。

ビニル基含有オルガノシロキサンは、それ自体を金属に対する配位子としてもよいが、他の配位子を配位させる際の溶媒として用いてもよい。ビニル基含有オルガノシロキサンを溶媒として用い、前述のカルボニル基を含む化合物を配位子とする錯体は、本発明の触媒 [D] として、特に好ましい。

## 【0064】

このような錯体としては、具体的には、白金－カルボニル錯体のビニルメチル環状シロキサン溶液、白金－カルボニル錯体のビニルエチル環状シロキサン溶液、白金－カルボニル錯体のビニルプロピル環状シロキサン溶液、白金－カルボニ

ル錯体のジビニルテトラメチルジシロキサン溶液、白金-カルボニル錯体のジビニルテトラエチルジシロキサン溶液、白金-カルボニル錯体のジビニルテトラプロピルジシロキサン溶液、白金-カルボニル錯体のジビニルテトラブチルジシロキサン溶液、白金-カルボニル錯体のジビニルテトラフェニルジシロキサン溶液が挙げられる。

## 【0065】

これらの錯体からなる触媒は、ビニル基および／またはカルボニル基を含む化合物以外の成分を更に含んでもよい。たとえばビニル基および／またはカルボニル基を含む化合物以外の溶媒を含んでもよい。これらの溶媒としては、各種アルコールや、キシレン等を挙げることができるが、これらに制限されるものではない。

## 【0066】

アルコールとしては、具体的には、メチルアルコール、エチルアルコール、プロピルアルコール、イソプロピルアルコール、ブチルアルコール、sec-ブチルアルコール、tert-ブチルアルコール、n-アミルアルコール、イソアミルアルコール、ヘキシルアルコール、ヘプチルアルコール、オクチルアルコール、カプリルアルコール、ノニルアルコール、デシルアルコール、ウンデシルアルコール、ラウリルアルコール、トリデシルアルコール、ミリスチルアルコール、セチルアルコール、ステアリルアルコール、エイコシルアルコール等の脂肪族飽和アルコール類；

アリルアルコール、クロチルアルコール等の脂肪族不飽和アルコール類；

シクロペンタノール、シクロヘキサノール等の脂環式アルコール類；

ベンジルアルコール、シンナミルアルコール等の芳香族アルコール類；

フルフリルアルコール等の複素環式アルコール類などが挙げられる。

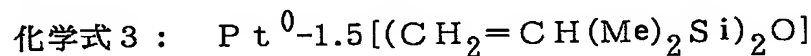
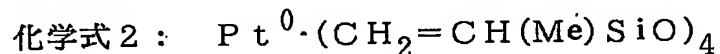
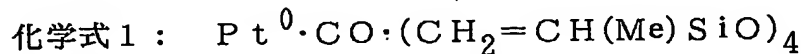
## 【0067】

アルコールを溶媒として用いた例として、白金-オクタナル／オクタノール錯体が挙げられる。これらの溶媒を含むことにより、触媒の取扱いや、ゴム組成物への混合が容易になる等の利点が生ずる。

以上に挙げた各種触媒のうちで、白金-カルボニル錯体のビニルメチル環状シ

ロキサン溶液（中でも下記化学式 1 で示される錯体が好ましい）、白金-ビニルメチル環状シロキサン錯体（中でも化学式 2 で示される錯体が好ましい）、白金-ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体（中でも化学式 3 で示される錯体が好ましい）、白金-オクタナル/オクタノール錯体等が実用上好ましく、その中でも、白金-カルボニルビニルメチル環状シロキサン錯体が特に好ましい。

## 【0068】



これらの触媒に含まれる周期律表 8 族元素金属（好ましくは白金）の割合は、通常 0.1～10 重量%、好ましくは 1～5 重量%、さらに好ましくは 2～4 重量%、特に好ましくは 2.5～3.5 重量%である。

## 【0069】

触媒 [D] は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A] とオルガノポリシロキサン [B] との合計（[A] + [B]）に対して、0.1～100,000 重量 ppm、好ましくは 0.1～10,000 重量 ppm、さらに好ましくは 1～5,000 重量 ppm、特に好ましくは 5～1,000 重量 ppm の割合で用いられる。

## 【0070】

上記範囲内の割合で触媒 [D] を用いると、架橋密度が適度で、強度特性および伸び特性に優れる架橋ゴム成形体を形成できるゴム組成物が得られる。100,000 重量 ppm を超える割合で触媒 [D] を用いると、コスト的に不利になるので好ましくない。

なお、本発明においては、上記触媒 [D] を含まないゴム組成物の未架橋ゴム成形体に、光、 $\gamma$ 線、電子線等を照射して架橋ゴム成形体を得ることもできる。

## 【0071】

反応抑制剤 [E]

本発明で触媒 [D] とともに任意成分として用いられる反応抑制剤 [E] としては、ベンゾトリアゾール、エチニル基含有アルコール（たとえばエチニルシク

ロヘキサノール等)、アクリロニトリル、アミド化合物(たとえばN,N-ジアリルアセトアミド、N,N-ジアリルベンズアミド、N,N,N',N'-テトラアリル-*o*-フタル酸ジアミド、N,N,N',N'-テトラアリル-*m*-フタル酸ジアミド、N,N,N',N'-テトラアリル-*p*-フタル酸ジアミドなど)、イオウ、リン、窒素、アミン化合物、イオウ化合物、リン化合物、スズ、スズ化合物、テトラメチルテトラビニルシクロテトラシロキサン、ハイドロパーオキサイド等の有機過酸化物などが挙げられる。

#### 【0072】

反応抑制剤[E]は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体[A]とオルガノポリシロキサン[B]との合計([A] + [B])100重量部に対して、0~50重量部、通常0.0001~50重量部、好ましくは0.0001~30重量部、より好ましくは0.0001~20重量部、さらに好ましくは0.0001~10重量部、特に好ましくは0.0001~5重量部の割合で用いられる。

#### 【0073】

50重量部以下の割合で反応抑制剤[E]を用いると、架橋スピードが速く、架橋ゴム成形体の生産性に優れたゴム組成物が得られる。50重量部を超える割合で反応抑制剤[E]を用いると、コスト的に不利になるので好ましくない。

#### その他の成分

本発明に係る燃料電池シール部品用ゴム組成物は、架橋ゴム成形体あるいは架橋ゴム発泡成形体のような架橋物として用いた場合に最もその特性を発揮することができる。

#### 【0074】

本発明に係る燃料電池シール部品用ゴム組成物中に、意図する架橋物の用途等に応じて、従来公知のゴム補強剤、無機充填剤、軟化剤、老化防止剤、加工助剤、加硫促進剤、有機過酸化物、架橋助剤、発泡剤、発泡助剤、着色剤、分散剤、難燃剤などの添加剤を、本発明の目的を損なわない範囲で配合することができる。

#### 【0075】

上記ゴム補強剤は、架橋(加硫)ゴムの引張強度、引き裂き強度、耐摩耗性な

どの機械的性質を高める効果がある。このようなゴム補強剤としては、具体的には、SRF、GPF、FEF、HAF、ISAF、SAF、FT、MT等のカーボンブラック、シランカップリング剤などにより表面処理が施されているこれらのカーボンブラック、微粉ケイ酸、シリカなどが挙げられる。

## 【0076】

シリカ的具体例としては、煙霧質シリカ、沈降性シリカなどが挙げられる。これらのシリカは、ヘキサメチルジシラザン、クロロシラン、アルコキシシラン等の反応性シランあるいは低分子量のシロキサン等で表面処理されていてもよい。また、これらシリカの比表面積（BET法）は、好ましくは $10\text{ m}^2/\text{g}$ 以上、より好ましくは $30\sim500\text{ m}^2/\text{g}$ である。

## 【0077】

これらのゴム補強剤の種類および配合量は、その用途により適宜選択できるが、ゴム補強剤の配合量は通常、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体〔A〕とオルガノポリシロキサン〔B〕との合計（〔A〕+〔B〕）100重量部に対して、最大300重量部、好ましくは最大200重量部である。

上記無機充填剤としては、具体的には、軽質炭酸カルシウム、重質炭酸カルシウム、タルク、クレーなどが挙げられる。

## 【0078】

これらの無機充填剤の種類および配合量は、その用途により適宜選択できるが、無機充填剤の配合量は通常、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体〔A〕とオルガノポリシロキサン〔B〕との合計（〔A〕+〔B〕）100重量部に対して、最大300重量部、好ましくは最大200重量部である。

上記軟化剤としては、通常ゴムに使用される軟化剤を用いることができる。

## 【0079】

具体的には、プロセスオイル、潤滑油、パラフィン、流動パラフィン、石油アスファルト、ワセリン等の石油系軟化剤；

コールタール、コールタールピッチ等のコールタール系軟化剤；

ヒマシ油、アマニ油、ナタネ油、ヤシ油等の脂肪油系軟化剤；

トール油；

サブ；

蜜ロウ、カルナウバロウ、ラノリン等のロウ類；

リシノール酸、パルミチン酸、ステアリン酸バリウム、ステアリン酸カルシウム、ラウリン酸亜鉛等の脂肪酸および脂肪酸塩；

石油樹脂、アタクチックポリプロピレン、クマロンインデン樹脂等の合成高分子物質を挙げることができる。中でも石油系軟化剤が好ましく用いられ、特にプロセスオイルが好ましく用いられる。

#### 【0080】

これらの軟化剤の配合量は、架橋物の用途により適宜選択される。

上記老化防止剤としては、たとえばアミン系、ヒンダードフェノール系、またはイオウ系老化防止剤などが挙げられるが、これらの老化防止剤は、上述したように、本発明の目的を損なわない範囲で用いられる。

本発明で用いられるアミン系老化防止剤としては、ジフェニルアミン類、フェニレンジアミン類などが挙げられる。

#### 【0081】

ジフェニルアミン類としては、具体的には、p-（p-トルエン・スルホニルアミド）-ジフェニルアミン、4,4'-（ $\alpha,\alpha$ -ジメチルベンジル）ジフェニルアミン、4,4'-ジオクチル・ジフェニルアミン、ジフェニルアミンとアセトンとの高温反応生成物、ジフェニルアミンとアセトンとの低温反応生成物、ジフェニルアミンとアニリンとアセトンとの低温反応物、ジフェニルアミンとジイソブチレンとの反応生成物、オクチル化ジフェニルアミン、ジオクチル化ジフェニルアミン、p, p'-ジオクチル・ジフェニルアミン、アルキル化ジフェニルアミンなどが挙げられる。

#### 【0082】

フェニレンジアミン類としては、具体的には、N,N'-ジフェニル-p-フェニレンジアミン、n-イソプロピル-N'-フェニル-p-フェニレンジアミン、N,N'-ジ-2-ナフチル-p-フェニレンジアミン、N-シクロヘキシル-N'-フェニル-p-フェニレンジアミン、N-フェニル-N'-(3-メタクリロイルオキシ-2-ヒドロキシプロピル)-p-フェニレンジアミン、N,N'-ビス（1-メチルヘプチル）-p-フェニレ

ンジアミン、N,N'-ビス(1,4-ジメチルペンチル)-p-フェニレンジアミン、N,N'-ビス(1-エチル-3-メチルペンチル)-p-フェニレンジアミン、N-(1,3-ジメチルブチル)-N'-フェニル-p-フェニレンジアミン、フェニルヘキシル-p-フェニレンジアミン、フェニルオクチル-p-フェニレンジアミン等のp-フェニレンジアミン類などが挙げられる。

### 【0083】

これらの中でも、特に4,4'-( $\alpha$ , $\alpha$ -ジメチルベンジル)ジフェニルアミン、N,N'-ジ-2-ナフチル-p-フェニレンジアミンが好ましい。

これらの化合物は、単独で、あるいは2種以上組み合わせて用いることができる。

本発明で用いられるヒンダードフェノール系老化防止剤としては、具体的には

- (1) 1,1,3-トリス-(2-メチル-4-ヒドロキシ-5-t-ブチルフェニル)ブタン、
- (2) 4,4'-ブチリデンビス-(3-メチル-6-t-ブチルフェノール)、
- (3) 2,2-チオビス(4-メチル-6-t-ブチルフェノール)、
- (4) 7-オクタデシル-3-(4'-ヒドロキシ-3',5'-ジ-t-ブチルフェニル)プロピオネート、
- (5) テトラキス-[メチレン-3-(3',5'-ジ-t-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]メタン、
- (6) ペンタエリスリトール-テトラキス[3-(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、
- (7) トリエチレングリコール-ビス[3-(3-t-ブチル-5-メチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、
- (8) 1,6-ヘキサンジオール-ビス[3-(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、
- (9) 2,4-ビス(n-オクチルチオ)-6-(4-ヒドロキシ-3,5-ジ-t-ブチルアニリン)-1,3,5-トリアジン、
- (10) トリス-(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-イソシアヌレート、

- (11) 2,2-チオ- ジエチレンビス [3- (3,5-ジ-*t*- ブチル-4- ヒドロキシフェニル) プロピオネート]、
- (12) N,N'- ヘキサメチレンビス (3,5-ジ-*t*- ブチル-4- ヒドロキシ) - ヒドロシンナמיד、
- (13) 2,4-ビス [ (オクチルチオ) メチル] - *o*-クレゾール、
- (14) 3,5-ジ-*t*- ブチル-4- ヒドロキシベンジル- ホスホネート- ジエチルエステル、
- (15) テトラキス [メチレン (3,5-ジ-*t*- ブチル-4- ヒドロキシヒドロシンナメイト) ] メタン、
- (16) オクタデシル-3- (3,5-ジ-*t*- ブチル-4- ヒドロキシフェニル) プロピオン酸エステル、
- (17) 3,9-ビス [2- {3- (3-*t*-ブチル-4- ヒドロキシ-5- メチルフェニル) プロピオニルオキシ} -1,1- ジメチルエチル] -2,4-8,10-テトラオキサスピロ [5,5] ウンデカン

などを挙げる事ができる。中でも、特に (5)、(17) のフェノール化合物が好ましい。

#### 【 0 0 8 4 】

本発明で用いられるイオウ系老化防止剤としては、通常ゴムに使用されるイオウ系老化防止剤が用いられる。

具体的には、2-メルカプトベンゾイミダゾール、2-メルカプトベンゾイミダゾールの亜鉛塩、2-メルカプトメチルベンゾイミダゾール、2-メルカプトメチルベンゾイミダゾールの亜鉛塩、2-メルカプトメチルイミダゾールの亜鉛塩等のイミダゾール系老化防止剤；

ジミリスチルチオジプロピオネート、ジラウリルチオジプロピオネート、ジステアリルチオジプロピオネート、ジトリデシルチオジプロピオネート、ペンタエリスリトール- テトラキス- ( $\beta$ -ラウリル- チオプロピオネート) 等の脂肪族チオエーテル系老化防止剤などを挙げる事ができる。これらの中でも、特に2-メルカプトベンゾイミダゾール、2-メルカプトベンゾイミダゾールの亜鉛塩、2-メルカプトメチルベンゾイミダゾール、2-メルカプトメチルベンゾイミダゾール



の亜鉛塩、ペンタエリスリトール- テトラキス- ( $\beta$ -ラウリル- チオプロピオネート) が好ましい。

## 【0085】

上記の加工助剤としては、通常のゴムの加工に使用される化合物を使用することができる。具体的には、リシノール酸、ステアリン酸、パルチミン酸、ラウリン酸等の高級脂肪酸；ステアリン酸バリウム、ステアリン酸亜鉛、ステアリン酸カルシウム等の高級脂肪酸の塩；リシノール酸、ステアリン酸、パルチミン酸、ラウリン酸等の高級脂肪酸のエステル類などが挙げられる。

## 【0086】

このような加工助剤は、通常、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A] とオルガノポリシロキサン [B] との合計 ([A] + [B]) 100重量部に対して、10重量部以下、好ましくは5重量部以下の割合で用いられるが、要求される物性値に応じて適宜最適量を決定することが望ましい。

本発明においては、上述した触媒 [D] の他に有機過酸化物を使用して、付加架橋とラジカル架橋の両方を行なってもよい。有機過酸化物は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A] とオルガノポリシロキサン [B] との合計 ([A] + [B]) 100重量部に対し、0.1～10重量部程度の割合で用いられる。有機過酸化物としては、ゴムの架橋の際に通常使用されている従来公知の有機過酸化物を使用することができる。

## 【0087】

また、有機過酸化物を使用するときは、架橋助剤を併用することが好ましい。架橋助剤としては、具体的には、イオウ；p-キノンジオキシム等のキノンジオキシム系化合物；ポリエチレングリコールジメタクリレート等のメタクリレート系化合物；ジアリルフタレート、トリアリルジアヌレート等のアリル系化合物；マレイミド系化合物；ジビニルベンゼンなどが挙げられる。このような架橋助剤は、使用する有機過酸化物1モルに対して0.5～2モル、好ましくは約等モルの量で用いられる。

## 【0088】

また、本発明に係る架橋可能なゴム組成物中に、本発明の目的を損なわない範

囲で、公知の他のゴムとブレンドして用いることができる。

このような他のゴムとしては、天然ゴム（NR）、イソプレンゴム（IR）などのイソプレン系ゴム、ブタジエンゴム（BR）、スチレン-ブタジエンゴム（SBR）、アクリロニトリル-ブタジエンゴム（NBR）、クロロプレンゴム（CR）などの共役ジエン系ゴムを挙げることができる。

#### 【0089】

さらに従来公知のエチレン・ $\alpha$ -オレフィン系共重合体ゴムを用いることもでき、たとえばエチレン・プロピレンランダム共重合体（EPR）、前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体〔A〕以外のエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・ポリエン共重合体（たとえばEPDMなど）を用いることができる。

#### ゴム組成物および燃料電池シール部品の調製

上述したように、本発明に係る燃料電池シール部品用ゴム組成物は、架橋ゴム成形体として用いた場合に最もその特性を発揮することができる。したがって、本発明に係る燃料電池シール部品、例えば、燃料電池セルシール部品は、通常は架橋ゴム成形体である。

#### 【0090】

本発明に係る燃料電池シール部品用ゴム組成物から架橋ゴム成形体を製造するには、通常一般のゴムを加硫（架橋）するときと同様に、未架橋の配合ゴムを一度調製し、次いで、この配合ゴムを意図する形状に成形した後に架橋を行なえばよい。

本発明の燃料電池シール部品は、例えば、固体高分子型（固体高分子電解質型）燃料電池シール部品であることが好ましい。

#### 【0091】

架橋方法としては、架橋剤（SiH基含有化合物〔C〕）を使用して加熱する方法、または光、 $\gamma$ 線、電子線照射による方法のどちらを採用してもよい。

まず、本発明に係る燃料電池シール部品用ゴム組成物は、たとえば次のような方法で調製される。

すなわち、本発明に係る燃料電池シール部品用ゴム組成物は、バンバリーミキサー、ニーダー、インターミックスのようなインターナルミキサー（密閉式混合

機) 類により、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A]、オルガノポリシロキサン [B]、ゴム補強剤、無機充填剤、軟化剤などの添加剤を好ましくは 50~180℃の温度で 3~10 分間混練した後、オープンロールのようなロール類、あるいはニーダーを使用して、SiH 基含有化合物 [C] および必要に応じて触媒 [D]、反応抑制剤 [E]、加硫促進剤、架橋助剤を追加混合し、ロール温度 100℃以下で 1~30 分間混練した後、分出しすることにより調製することができる。

#### 【0092】

また、インターナルミキサー類での混練温度が低い場合には、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体 [A]、オルガノポリシロキサン [B]、SiH 基含有化合物 [C]、ゴム補強剤、無機充填剤、軟化剤などとともに、老化防止剤、着色剤、分散剤、難燃剤などを同時に混練してもよい。

上記のようにして調製された、本発明に係る燃料電池シール部品用ゴム組成物は、LIM 成形機、インジェクション成形機、トランスファー成形機、プレス成形機、押出成形機、カレンダーロールなどを用いる種々の成形法より、意図する形状に成形され、成形と同時にまたは成型物を加硫槽内に導入し、架橋することができる。これらの中でも、LIM 成形機は、厚薄精度、高速成形の点から目的とする燃料電池シール部品を製造するに好適である。また、射出成形や圧縮成形も好適である。架橋条件としては、50~270℃の温度で 0.5~30 分間加熱するか、あるいは前記した方法により光、 $\gamma$  線、電子線を照射することにより架橋ゴム成形体、すなわち本発明においては燃料電池シール部品が得られる。また、常温で架橋することもできる。

#### 【0093】

この架橋の段階は金型を用いてもよいし、また金型を用いなくて架橋を実施してもよい。金型を用いない場合は成形、架橋の工程は通常連続的に実施される。加硫槽における加熱方法としては、熱空気、ガラスビーズ流動床、UHF (極超短波電磁波)、スチームなどの加熱槽を用いることができる。

本発明に係るゴム組成物を特に LIM 成形に適用する場合は、SiH 基含有化合物 [C] と触媒 [D] とを別々に配合した液状ゴム組成物を調製することが望

ましい。

#### 【 0 0 9 4 】

すなわち、材料の粘度により適宜使い分けるが、バンバリーミキサー、ニーダー、インターミックスのようなインターナルミキサー（密閉式混合機）類やプラネタリミキサーのような攪拌機により、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体〔A〕、オルガノポリシロキサン〔B〕、ゴム補強剤、無機充填剤、軟化剤などの添加剤およびSiH基含有化合物〔C〕を3～10分間混練し、液状ゴム組成物（1）を調製する。さらに、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体〔A〕、オルガノポリシロキサン〔B〕、ゴム補強剤、無機充填剤、軟化剤などの添加剤および触媒〔D〕、必要に応じて反応抑制剤〔E〕を3～10分混練し、液状ゴム組成物（2）を調製する。続いて、これら液状ゴム組成物（1）と液状ゴム組成物（2）とをLIM成形装置に直接接続可能な専用のパール缶または直接接続可能なカートリッジに入れ、計量、混合装置を経てLIM成形を施すことにより、目的とする燃料電池シール部品を得ることができる。

#### 【 0 0 9 5 】

次に、燃料電池シール部品の一例を図面を用いて説明する。

燃料電池では、セルをシールすることが重要であり、このシールは、ガスバリア性等に優れている必要がある。

シール部品は、例えば、図1、図2の符号3で示されるような形状を有している。また、該シール部品の平面形状は、例えば、図1において符号3で示すような平面外形形状を有している。

#### 【 0 0 9 6 】

##### 【発明の効果】

本発明に係る燃料電池シール部品用ゴム組成物は、架橋速度が速く、生産性（高速成形性）に優れ、耐圧縮永久歪み性、ガスバリア性（水素、酸素、水蒸気、等が80℃から120℃程度の環境で低透過性であること）、耐熱性、耐酸性（硫酸等のスルホン酸に対する耐性があること）、耐冷却水（LLC等）性などの特性に優れる燃料電池シール部品を提供することができる。

## 【0097】

本発明に係る燃料電池シール部品は、上記ゴム組成物から調製されるので、生産性に優れ、耐圧縮永久歪み性、ガスバリア性（水素、酸素、水蒸気、等が80℃から120℃程度の環境で低透過性であること）、耐酸性（硫酸等のスルホン酸に対する耐性があること）、耐冷却水（LLC等）性、などの特性に優れている。

## 【0098】

## 【実施例】

以下、本発明を実施例により説明するが、本発明は、これら実施例により何ら限定されるものではない。

なお、実施例、比較例で用いた共重合体[A]の組成、ヨウ素価、極限粘度 $[\eta]$ などは、次のような方法で測定ないし計算により求めた。

## (1) 共重合体[A]の組成

共重合体[A]の組成は $^{13}\text{C}$ -NMR法で測定した。

## (2) 共重合体[A]のヨウ素価

共重合体[A]のヨウ素価は、滴定法により求めた。

(3) 極限粘度 $[\eta]$ 

共重合体[A]の極限粘度 $[\eta]$ は、135#デカリン中で測定した。

## 【0099】

## 【製造例1】

【エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-1）の製造】

攪拌羽根を備えた実質内容積100リットルのステンレス製重合器（攪拌回転数=250rpm）を用いて、連続的にエチレンとプロピレンと5-ビニル-2-ノルボルネンとの三元共重合を行なった。重合器側部より液相へ毎時ヘキサンを60リットル、エチレンを3.0kg、プロピレンを9.0kg、5-ビニル-2-ノルボルネンを550gの速度で、また、水素を50リットル、触媒として $\text{VOCl}_3$ を95ミリモル、 $\text{Al}(\text{Et})_2\text{Cl}$ を443ミリモル、 $\text{Al}(\text{Et})_{1.5}\text{Cl}_{1.5}$ を127ミリモルの速度で連続的に供給した。

## 【0100】

以上に述べたような条件で共重合反応を行なうと、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-1）が均一な溶液状態で得られた。

その後、重合器下部から連続的に抜き出した重合溶液中に少量のメタノールを添加して重合反応を停止させ、スチームストリッピング処理にて重合体を溶媒から分離したのち、55℃で48時間真空乾燥を行なった。

## 【0101】

上記のようにして得られたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-1）の物性を表1に示す。

なお、表1中、エチレン含量、ジエン含量は質量%で示している。

## 【0102】

## 【製造例2～4】

製造例1において、重合条件を表1の通りに変えることにより、異なる性状のエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-2）、（A-3）を得た。得られた共重合体ゴム（A-2）、（A-3）の物性を表1に示す。

## 【0103】

【表 1】

表 1

共重合体 ゴム	触媒	Al/V Al(Et) <sub>1.5</sub> Cl <sub>1.5</sub>	Al(Et) <sub>2</sub> Cl/ Al(Et) <sub>1.5</sub> Cl <sub>1.5</sub>	重合温度 (°C)	重合圧力 (kgf/cm <sup>2</sup> )	触媒 7i-ド (mmol/h)	ジイン	ジイン 7i-ド (g/h)	$\alpha$ -オクテン
A-1	VOC <sub>1.3</sub> -Al(Et) <sub>2</sub> Cl/Al(Et) <sub>1.5</sub> Cl <sub>1.5</sub>	6	7/2	40	7.1	95	VNB	550	7i-ド
A-2	VOC <sub>1.3</sub> -Al(Et) <sub>2</sub> Cl/Al(Et) <sub>1.5</sub> Cl <sub>1.5</sub>	6	7/2	40	7.1	45	VNB	330	7i-ド
A-3	VOC <sub>1.3</sub> -Al(Et) <sub>2</sub> Cl/Al(Et) <sub>1.5</sub> Cl <sub>1.5</sub>	6	7/2	40	7.2	90	VNB	550	7i-ド

【0104】

【実施例 1】

共重合体 ゴム	7i-ド (kg/h)	H <sub>2</sub> 7i-ド (NL/h)	収量 (kg/h)	7i-ド 含有 (%)	[ $\eta$ ] (dl/g)	IV (g/100g)	ジイン 含有 (%)
A-1	3.0/9.0	70	3.5	61	0.2	15	7.1
A-2	3.0/9.5	50	4.5	61	0.7	10	4.7
A-3	2.8/11.5	40	4.1	56	1.7	15	7.1

(註 1) VNB: 5-ビニル-2-ノルボルネン

(註 2) Et: エトキシ基

(註 3) IV: ヨウ素価

まず、表1に示すエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム(A-1) 100重量部と、カーボンプラック〔東海カーボン(株)製、商品名 シーストG-116〕30重量部を容量2リットルのプラネタリーミキサー〔(株)井上製作所製、商品名: PLM-2型〕で混練し、配合物(I-1)を得た。

## 【0105】

次に、この配合物(I-1) 130重量部に、 $C_6H_5-Si(OSi(CH_3)_2H)_3$ で示されるSiH基含有化合物[C] (架橋剤) 4重量部、反応抑制剤[E]としてエチルシクロヘキサノール0.1重量部、触媒[D]として塩化白金酸濃度2重量%のイソプロピルアルコール溶液0.1重量部を加えて、3インチφの3本ロール〔(株)小平製作所製、商品名3本ロールミル〕で3回混練したのちに、50トンプレス成形機を用いて120℃で6分間加圧し、厚み2mmの架橋ゴムシートを調製した。

## 【0106】

上記のようにして得られたシートを用い、引張試験を下記の方法に従って行なった。

## (1) 引張試験

JIS K6251に従って、測定温度23℃、引張速度500mm/分の条件で引張試験を行ない、架橋シートの破断時の引張強度 $T_B$ と伸び $E_B$ を測定した。

## (2) ガスバリア性

JIS K7126に従って、下記の条件でガスバリア試験を行ない、酸素透過係数を測定した。

## (測定条件)

酸素100%、試験温度23℃、湿度0%。

## (試験機)

東洋精機(株)製、差圧法ガス透過試験機。

## (3) 耐酸性

JIS K6258に従って、下記の条件で酸性溶液へ浸漬試験を行った後



、引張伸び、強度、及び体積変化率を測定し、それぞれの変化率（硬さは変化値）を求めた。

（浸漬条件）

25℃、168時間。

（酸性溶液）

塩酸35重量%濃度溶液。

【0107】

硫酸70重量%濃度溶液。

【0108】

【実施例2】

実施例1において、実施例1で用いたカーボンプラック30重量部の代わりに、表2に示すようにシリカ〔商品名 ニプシルVN3、日本シリカ工業（株）製〕を30重量部用いた以外は、実施例1と同様にして、架橋ゴムシートを得た。

得られた架橋ゴムシートについて、引張試験、ガスバリア試験、耐酸性試験を行なった。その結果を表2に示す。

【0109】

【実施例3】

実施例1において、実施例1で用いたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-1）の代わりに、表1に示すエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-2）を用いた以外は、実施例1と同様にして、架橋ゴムシートを得た。

【0110】

得られた架橋ゴムシートについて、引張試験、ガスバリア試験、耐酸性試験を行なった。その結果を表2に示す。

【0111】

【実施例4】

実施例1において、実施例1で用いたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-1）の代わりに、表1に示すエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-3）を用い

た以外は、実施例 1 と同様にして、架橋ゴムシートを得た。

【0112】

得られた架橋ゴムシートについて、引張試験、ガスバリア試験、耐酸性試験を行なった。その結果を表 2 に示す。

【0113】

【比較例 1】

まず、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) 100 重量部と、カーボンプラック [東海カーボン (株) 製、商品名 シースト G-116] 30 重量部を容量 2 リットルのプラネタリミキサー [(株) 井上製作所製、商品名: PLM-2 型] で混練した。

【0114】

次に、この配合物 130 重量部に、硫黄 1.5 重量部、加硫促進剤として 2-メルカプトベンゾチアゾール [三新化学工業 (株) 製、商品名 サンセラー M] 0.5 重量部、テトラメチルチウラムジスルフィド [三新化学工業 (株) 製、商品名 サンセラー TT] 1.0 重量部、亜鉛華 5 重量部およびステアリン酸 1 重量部を加えて、3 インチ  $\phi$  の 3 本ロール [(株) 小平製作所製、商品名 3 本ロール] で 3 回混練したのちに、50 トンプレス成形機を用いて 120℃ で 6 分間加圧し、厚み 2 mm の架橋ゴムシートを調製したが、物性測定が可能な加硫ゴムシートは得られなかった。

【0115】

【表 2】

表 2

組成物 [重量部]	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	比較例 1
共重合体ゴム (A-1)	100	100			100
共重合体ゴム (A-2)			100		
共重合体ゴム (A-3)				100	
$C_6H_5Si(-OSi(CH_3)_2H)_3$ [C]	4	4	4	4	
2%塩化白金酸 IPA 溶液 [D]	0.1	0.1	0.1	0.1	
エチニルシクロヘキサノール [E]	0.1	0.1	0.1	0.1	
カーボンブラック	30		30	30	30
シリカ		30			
硫黄					1.5
加硫促進剤 (サンセラー <sup>TM</sup> M)					0.5
加硫促進剤 (サンセラー <sup>TM</sup> TT)					1
亜鉛華					5
ステアリン酸					1
架橋ゴムシートの物性					架橋せず
$T_B$ [MPa]	5.5	6.2	7.5	10	
$E_B$ [%]	110	130	230	350	
酸素透過係数 [ $cm^3 \cdot mm/m^2 \cdot 24hr \cdot atm$ ]	420	370	410	360	
耐酸性 (塩酸 35 重量%濃度溶液)					
$T_B$ 残留率 (%)	102	103	100	110	
$E_B$ 残留率 (%)	100	100	99	100	
体積変化率 (%)	0	0.1	0	0	
耐酸性 (硫酸 70 重量%濃度溶液)					
$T_B$ 残留率 (%)	100	101	102	100	
$E_B$ 残留率 (%)	93	93	94	95	
体積変化率 (%)	0.3	0.1	0.2	0	

(註) 成分 [D] の IPA: イソプロピルアルコール

## 【図面の簡単な説明】

## 【図 1】

図 1 は、燃料電池用セパレーター一体型セルシール部品の一例を示す斜視図である。

【図 2】

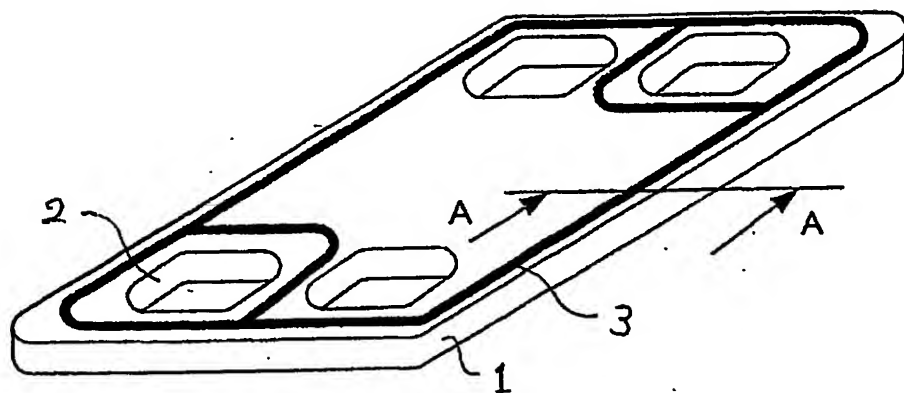
図 2 は、図 1 における A - A における模式断面図である。

【符号の説明】

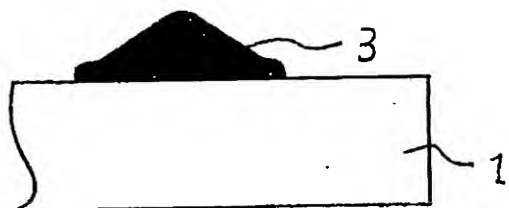
- 1 …カーボンあるいは樹脂製セパレーター
- 2 … 空隙
- 3 … シール材部

【書類名】 図面

【図 1】



【図 2】



## 【書類名】

## 要 約 書

## 【要約】

【解決手段】本発明の燃料電池シール部品用ゴム組成物は、エチン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリン共重合体 [A] と、平均組成式 (I) :  $R^1_t SiO_{(4-t)/2}$  ( $R^1$  は非置換または置換の一価炭化水素基。  $t$  は 1.9~2.1 の数。) の有機ポリシラン [B] と、SiH 基含有化合物 [C] とを含有してなり、[A] : [B] が重量比で 100 : 0~5 : 95 であることを特徴とする。該成分 [A] は、エチン/炭素原子数 3~20 の  $\alpha$ -オレフィン (質量比) が 35/65~95/5 であり、ヨウ素価が 0.5~50 であり、135℃ でカリン溶液中で測定した極限粘度が 0.01~5.0 dl/g であり、特定の末端ビニル基含有有機化合物から導かれる構成単位を有することが望ましい。成分 [C] は、SiH 基を 1 分子中に少なくとも 2 個有していることが好ましい。本発明の燃料電池シール部品は、上記ゴム組成物からなる。

【効果】上記ゴム組成物は、架橋速度が速く、生産性に優れ、耐圧縮永久歪み性、ガスバリア性、耐熱性、耐酸性、耐冷却水性などの特性に優れる燃料電池シール部品を提供できる。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[000005887]

1. 変更年月日

1997年10月 1日

[変更理由]

名称変更

住 所

東京都千代田区霞が関三丁目2番5号

氏 名

三井化学株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**